EUROPEAN PATENT OFFICE

Patent Abstracts of Japan

PUBLICATION NUMBER

60081256

PUBLICATION DATE

09-05-85

APPLICATION DATE

12-10-83

APPLICATION NUMBER

58190370

APPLICANT: SHIN ETSU CHEM CO LTD;

INVENTOR :

SATO KAZUHARU;

INT.CL.

C09D 3/82 C08J 7/04

TITLE

COATING COMPOSITION

S

ABSTRACT :

PURPOSE: A coating composition, obtained by incorporating a mixture of an ethyltrialkoxysilane with a trialkoxysilane, etc. or further a cohydrolyzate thereof with silicic acid anhydride in a specific proportion, capable of giving films having improved abrasion and weather resistance and flexibility, and useful for molded plastic articles.

CONSTITUTION: A coating composition obtained by incorporating (A) 100pts.wt. mixture consisting of (i) 100~30wt% ethyltrialkoxysilane of the formula C₂H₅Si(OR¹)₃ (R1 is 1-4C alkyl) with (ii) 70-0wt% trialkoxysilane of the formula R²Si(OR¹)₃ (R² is H, methyl, vinyl or phenyl) and (iii) 30~0wt% organosilicon compound of the formula [R3 and R4 are alkyl; R5 and R6 are (substituted) monofunctional hydrocarbon; A is bifunctional hydrocarbon or a bifunctional organic group containing oxygen or sulfur; a and b are 2 or 3] or a cohydrolyzate thereof with (B) 200~50pts.wt. colloidal silica containing 10-50wt% silicic acid anhydride.

COPYRIGHT: (C) JPO

T AVAILABLE COP

COATING COMPOSITION

Title:

Patent Number: JP60081256 Publication date: 85-05-09

Inventor(s): HINOTO YUUJI; others. 03

Applicant(s): SHINETSU KAGAKU KOGYO KK.

Application Number: JP830190370 831012

Priority Number(s):

IPC Classification: C09D3/82, C08J7/04

Requested Patent: JP60081256

Equivalents:

Abstract

PURPOSE:A coating composition, obtained by incorporating a mixture of an ethyltrialkoxysilane with a trialkoxysilane, etc. or further a cohydrolyzate thereof with silicic acid anhydride in a specific proportion, capable of giving films having improved abrasion and weather resistance and flexibility, and useful for molded plastic articles.

CONSTITUTION:A coating composition obtained by incorporating (A) 100pts.wt. mixture consisting of (i) 100-30wt% ethyltrialkoxysilane of the formula C2H5Si(OR<1>)3 (R<1> is 1-4C alkyl) with (ii) 70-0wt% trialkoxysilane of the formula R<2>Si(OR<1>)3 (R<2> is H, methyl, vinyl or phenyl) and (iii) 30-0wt% organosilicon compound of the formula [R<3> and R<4> are alkyl; R<5> and R<6> are (substituted) monofunctional hydrocarbon; A is bifunctional hydrocarbon or a bifunctional organic group containing oxygen or sulfur; a and b are 2 or 3] or a cohydrolyzate thereof with (B) 200-50pts.wt. colloidal silica containing 10-50wt% silicic acid anhydride.

9日本国特許庁(JP)

⑪特許出願公開

⁽¹⁾ 公 開 特 許 公 報 (A) 昭60-81256

@Int_Cl_1 C 09 D 3/82 C 08 J

識別記号

庁内整理番号

母公開 昭和60年(1985)5月9日

6516-4J 7446-4F

審査請求 未請求 発明の数 1 (全8頁)

❷発明の名称 被覆用組成物

> 2)# 100 昭58-190370

は田野 頤 昭58(1983)10月12日

砂発 明 者 戸 悠 治

ーン電子材料技術研究所内

安中心磯部2丁目13番1号 信越化学工業株式会社シリコ

砂発 明 者 部

安中市磯部2丁目13番1号 信越化学工業株式会社シリコ

砂発 明 者 清 水 . 久 司 ーン電子材料技術研究所内

安中市磯部2丁目13番1号 信越化学工業株式会社シリコ

ーン電子材料技術研究所内

安中市磯部2丁目13番1号 信越化学工業株式会社シリコ

69発明者 和治

ーン電子材料技術研究所内

犯出 顧 人 信越化学工業株式会社 砂代 理 人 弁理士 山本 亮一

東京都千代田区大手町2丁目6番1号

1. 発明の名称

被迫用组成物

- 2. 特許請求の範囲
 - LA) I) 式 C2H5S1(OR¹)。 (ここにR¹ は **実最故1~4のアルキル店)で示される** エチルトリアルコキンシラン

100~30使11%

i) 式 R²Si(OR¹)。(ここにR¹ は前記 仁同じ、 R^2 は水点源子、メチル基、ビ ニル名またはフエニル場)で示されるト リアルコキシシラン 10~0項法%

m) 一役式 (R³O)a S1-A-S1 (OR⁴)b (ここに R^3 。 R^4 は同産または異様のア ルキル族、 $R^{f s}$ 。 $R^{f s}$ は同棲または発情の 非直換または直換1値炭化水最高、人は 2.価災化水桑基または奴素原子あるいは

競貨原子を含有する2個の有機基、a.b は2または3)で示される有成けい菜化

30~0剂准%

からなるもの。またはこれらの共知水分解物

100 (4 14 16

B) 無水けい酸を10~50 変は%介育するコ

ロイダルシリカ

200~50金流船

とからなることを特徴とする破壊用程成物。

3. 免明の評価な説明

本絶明は戒権用租成物、特には各権プラステッ ク競形品の表面被復材として好癖とされる財保に 性、耐酸性、可換性にすぐれた破膜を与える破液 用シリコーン组成物に関するものである。

プラステック吸形品は現在各種の用途に広汎に 使用されているけれども、これらは硬度が低く、 射原発性も小さいため、劣がつき易く、また射埃 性にも劣るためにその用途が制度されるという不

利がある。そのため、この種の成形品については、 その表面をメテルトリアルコキンレランの邸分稿 合物の低級低筋族アルコール度中にコロイド状ン リカを分放させた破役剤で処理する方法(特開昭 51-2736号公規移服]が収置されているが、 この方法で得られた破裂はベホに浸渍すると。ひ び切れを生じ、またヒートレヨックに弱く。長時 間知為するとひび割れを起すという欠点がある。 そしてこの改良方法として上記した方法において フェニルトリアルコキシレランを導入する方法(特開昭53-130732号公程哲服】、シノチ ルジアルコキンシランを導入する方法(特別昭 53 -92844号公報参照】も提案されているが、 この別者の方法はフェニルトリアルコキレンラン が3官形性レランであるため本質的に大きな改良 効果は得られず。またジメチルひアルコキシンラ ンはその承加量を多くするとひび別れ防止効果は 得られるが、この場合には基体との接着性がわる

は3)で示される何度けい業化合物

30~0重量%

からなるもの、またはこれらの共加水分解物

100重量部

5) 興水けい故を10~50 単: 1 % 含有するコロイダルシリカ 200~50 虫取部 とからなることを等放とするものである。

これを説明すると、本意明者らはプラスチック 反形品などの最質数点のための規模用組成物について様々稼得した情景。トリアンコキンシランと して特にエチルトリアルコキンシランを選択し、 これに上記した人)一番) 成分としての存録な行 设けい最化合物と当)成分としてのコロイダルシ リカを取削してなる組成物でプラスチック成形品 を改役すると、この投収が可慎性、制酸性、密音 性のすぐれたものとなるので、促来品におけるか び別れや吸消性不良という欠点が解決されるとい うことを見出し、これらの各成分およびもの透知 くなつて硬度が低くなるという欠点があった。 本発明はこのような不利を解決した被復用組成 物に関するもので、これは

AJI) 式 $C_2H_881(OR^1)_2$ (ここに R^1 は現素依 $1\sim 4$ のアルキル基)で示されるエチルト
タアルコキレレラン

100~3044%

 ま、R² Si(OR¹)。 (ここにR¹ は前紀に 同じ、R² は水素原子、メナル系、ビニル 落またはフエニル基)で示されるトリアル コキシシラン 70~0重線%

R 3 - a R 3 - b

ii) 一般式 $(R^3O)_a 81-A-81$ $(OR^4)_b$ (ここに R^3 , R^4 は同様または異様のアルキル族、 R^6 , R^6 は同様または異様の非成機または遺換 1 循環化水素系、 A は 2 循環化水素系素をは酸素原子あるいは鏡黄原子を含有する 2 循の有機系、 a , b は 2 また

1) 放分は式 C2H3Si(OR1)3 で示されるもので、
この R1 が 次数数1~4のアルキル 基である。例
えばエチルトリメトキシシラン、エチルトリエト
キシシラン、エチルトリイソプロボキシシラン、
エチルトリイソプトキシシランなどのエチルトリ
オルガノシラン等から選択される一棟または二様
以上の提合物であり。 1) 成分は式 ピ Si(OR1)1
で示されるもので、この R1 が 実 最終 1~4 のア
ルキル 基、 R2 が 水 素 順子、メチル 从。ピニル 様
またはフェニル 落である。例えばトリメトキシシラン、トリニトキシシラン、メチルトリメトキシシラン、メチルトリエトキシシラン、アニルトリエトキシシラン、アエニルトリエトキシシランなどから選択される一種または二曜以上

のアルコキレンランである。さらに、 🗉) 成今は

 $\vec{x} = \begin{bmatrix} R^{5}_{3-a} & R^{6}_{3-b} \end{bmatrix}$

「R³O)_a-Si-A-Si-(OR⁴)_b で示されるもので、R³ , R⁴ が同様または異種のアルキル基、Fi を が同様または異種のアルキル基、R⁵ , R⁶ が同様または異様の平式機または破後1 価炭化水 泉、Aが好ましくは炭素数2~6の2 価炭化水炭 馬、 破 泉泉子または突 黄原子を含有する好ましくは次 女は3~10の2 価の有優塔とされるもので、このAとしてはメテレン基、エテレン な、プロピレン 基などのアルキレン 基。またはフェニレン 基などのアルキレン 基。またはフェニレン 基などのアリーレン 基、あるいはこれらの 水 素原子が部分的にハロゲン原子、アルキル基などで 及 決された 店、さらには 式

この ii) 成分としての上記した有機けい素化合物は従来から知られている確々の方法で合成する ことができ、これは例えば

式
$$R^{5}$$
, 3-a (R³0)a S1-Y

(ここにYはハロゲン原子またはアルコキン族) で示されるひまたはトリアルコキシシランと

$$X = M_S = A = M_S = X$$

(ここにXはハロゲン原子)で示されるグリニャール化合切とを気容させる方法。

で示されるアルコキシモノハイドロジェンシラン と

(ここに R² は新坊変不昭和結合含有1値度化水 系装)で示されるアルコキンシランとを自金系数 -CH2 OH2 CH2 -O-CH2 OH2 CH3 -.

-CH₂CH₂OH₂-S-CH₂CH₂CH₂CH₂-B-CH₂CH₂CH₂-などの基が例示される。なお、この a , b は 2 ま たは 3 であり、この式 #) で示される化合物とし ては下記のものが例示される。

$$(CH_3O)_3 S1-CH_2 CH_2 CH_2 -S-CH_2 CH_2 CH_2 S1(OCH_3)_3 OCH_3 OC$$

雌の存在下で付加反応させる方法、

(R¹0)_a Si-R¹-SH メルカプトアルキル県含有アルコキシシランと上記式で示される (ここにR¹ は 2 値 度 化 水 素 場で 示される 脂 折 族

不飽和結合含有1個炭化水素基を含むアルコキシ シランとを繋外線照射下または有機過酸化物の存 在下で付加炭原させる方法。さらには上記式で示 したアルコキシモノハイドロジェンシランと 式 R^{θ} $-D-R^{10}$

(ここに R[®] , R¹⁰ は振坊叛不認和場合分介 1 栃 埃化水素基、 D は 2 栃炭化水素族または酸素原子 含有 2 備の存成基) で示される化合物を白金系触 鍵の存在下で付加反応させる方法などで合成する ことができる。

特局昭60- 81256 (4)

本明成物において必ずしも必須とされるものではないが、』)成分は似の処理を上げるためのもので70 単位%をこえると、できる優がもろく、またクラックが発生しやすいものとなり、また』) ス分は、設に可換性を付与するために協加するもので、この成分が30 重量%以上ではできる。段度の健康が低くなりすぎること、かつ優複性が落ちることから30 度量%以下にすべきである。以上の理由から1)、1)、1) 成分を併用することがより行ましい。

つぎに、本発明の租成物を収収するB)収分としてのコロイダルレリカは、無水けい値を10~50度は%含有するものとされるが、これは一般に市収されているルドックス(米国レコポン社製 避品名)、サイトン(米国モンサント社商品名)、 ナルコーク(米国ナルコ社製商品名)、スノーラ ックス(日産化学社製商品名)などであつてもよい。 このコロイダルレリカの産加量はこれを入 成分100重量配に対し50重量配来費とすると 皮製性配上、硬度的にやわらかくなり、また。ヒートレヨックテストにおいてクラックが発生し弱 くなるし、これを200重減即以上とすると皮膜 の外観においてくもり現象が見られるようになり。 透明性が失われてくる。また、コーティング所と してコロイダルレリカに含まれる水分のはが多く なるため、板のライフが短かくなるので。これは 人」収分100重数配に対し50~200重減即 の範囲内とすることが必要とされるが、このもの は本発明の組成物を安定化させて、これから待ち れる皮膜の物性を同上させるということが好ま しい。

本免明の組成物は、上記したA]成分の1)。
1)、1)とB]成分をたんに混合するだけでもよいが、好ましくは、まずA]次分を構成する1)。
1)、1)成分を部分縮合させておき、これに B]

収分を添加することによつて調整される。この部 分組合反応は、つぎに底加される3)収分である コロイダルシリカの位任によつて若干異なるけれ ども通常は溶晶で3日間~1週間、40~60℃ で10~15時間とすればよい。また、この母成 羽はゲル化筋止および遺特性のすぐれた皮膜を得 るという目的からはそのpH を 3.0~8.0 #の超 弱とすることがよく、この pH 過程には一般には 所領、半般、プロピオン版、マンイン版などの打 は似で行うことが好ましい。また、この団成羽は 河台反応により副生するアルコールを含有したも のとされるが、これには必要に応じ任意の有項格 例。水あるいはこれらの混合初を溶解または分取 させたものとしてもよく、この兵は必朔としては メタノール、エタノール、コープロパノーン、イ ソプナルアルコールなどの低級領方艇アルコール 頃、エチレングリコール、メナルセロソルブ、エ チルセロソルブなど心多価アルコールまたはその

エステル、エーテル類、アセトン、メテルエテル ケトン、テトラハイドロフラン、シオキナンなど の水俗性俗朝などが例示され。これらのうちでは 低級版功能アルコール娘、グリコールモノエステ ル頂またはこれらの使合物が好ましいものとされ るが、これらを2種以上組み合わせて使用する場 合にはシロキサノールを確実に俗解させるという ことからその20~75東征%を低級脂助展アル コールとすることが好ましい。なお、この母吃物 にはこの組成物によつて基体上に形成される皮質 の平角性を向上させる目的で様々な界面活性制。 例えばポリオキシアルキレングリコール・ジメチ ルシロキナン共東合体・KR-341[信码化学 工気社製。作品名)、フツ化アルキル系界面活生 前・プロテートドロー340(英戊化学社製、値 品名)などをこの組成物に対して 0.0 2~ 0.1 億 36%の顧用で添加してもよい。また、この組成物 には紫外段牧収剤を奈加してもよく、これによれ

ば何えばこの団成物をボリカーボネート表面に整 前したときにその表面の変色を防止することができ、この場外は吸収剤としてはベンソフェノン系、 トリアゾール系、ナルテル酸系などが使用されるが、本発明の団成物との相応性という点からこれは は2.4 - ひヒドコキレベンソフェノンとすることがよく、これはこの組成物に対し0.2~2.0 重量 %の範囲で参加すればよい。

本発明の組成物はこれを表面改資を目的とする 居材面にはけ受り、は近空布、回転空布、スプレ 一部布、流し受り、ローラー金布などで空布した のち、60~150℃の温度で30~120分間 加熱すると、すみやかに硬化して、耐候性、耐尿 既性にすぐれた皮膜を与えるが、この空布には 健设の皮膜の厚さが1.0~10戸里となるように すればよい。この空模は上記した加熱によって硬 化するが、これは脂肪酸のアルカリ金属塩、第4 級アンモニウム塩、第4級アンモニウムハイドロ オキナイドなどの公知の暗合機様を協加してもよく、これは人」成分に対し0.05~20以協加すればよいが、例配したコロイダルシリカが安定制としてNa:0を含有する場合にはこれが人」成分の社合時にpH 関税制として使用される有機酸と反応して解放ナトリウムなどを形成し、これが硬化性機として作動するので、この場合には特にこれを原加する必要はない。

ックフィルムなどの表面改良材として有用とされるが、この配合組成、皮膜形成を件、ブライマー 処理などの基材の削処理条件を適宜選択すれば、 アルミニクム、鉄、料などの金属面処理にも顕著 な効果を示す。

つぎに本発明の実施詞をあげるが、例中の部は 並以師を示したものであり、例中における皮膜の 初性は下記の方法による測定結果を示したもって ある。

1) 财盛凭任

1) スナールウールテスト

技費用組成物を基材面に依頼して再た皮膚の表面を#○○○のスチールクールで強く 強つて、傷の発生程度をしらべた。

a…場がつかない

b…若干切がつく

○…昔しく傷がつき塩場する

1)テーパ保托テスト

テーパ摩託試験器(東洋精改製作所製)を用い、荷重500gの摩託輪(8-10)を 100回転させたのちに、ヘイズノーター(東洋精改製作所製)で制定した。

2) 接着性(ゴバン目テスト)

致護用組成物の電布により形成された皮膜上に1 短間隔で報道に11 本別の傷を入れて1辺が1 無の正方形を100 個作り、この上に指揮テープ・セロテープ (ニチバン社製、商品名)を密費し、これを引きはがして制造しないます目の数を数えた。

3) 射线性テスト

アトラスユフコン(東洋精改製作所製、商品 ぞ)を用いて、無外機職議時間10℃、8時間、 及器機器時間10℃、4時間を1サイクルとし、 このときの複数の劣化をゴバン目デストで行い、 刺程するまでの時間を制定した。

4) 田げ加工性

持即昭60-81256 (6)

200 年 × 100 年 × 1 日のポリカーボネート板にプライマーPC-4(信息化学工業時段時品名)を使布して10分間風気させたのち、ここに破壊用型板物を塗布し、120 でで60分間加熱して皮膜を作り、ついでこれを170でで120秒間加熱した後。これを直径100 年の円筒型の丸棒(木製)に沿つて折り曲げてそのときのクラックの発生を提携した。

实施例

第1投に示した娘のエチルトリメトキンレラン、メチルトリメトキレレラン、レメチルレメトキレレラン、レメチルレメトキレレラン、下記に示したA、B、C、D4種の有機けい素化合物および酢酸1.6 邸とを現合し、水俗で冷却したのち、境伴しなが50~10でに保持し、これにコロイダルレリカ・スノーラックス(町田、平均な径5~10×4)を徐々に適下し、酒下这了役益度を10でに保持して4.5 時間慢伴を行い、ついでこれにイソプロパノール100部、

つぎに上記で母た被復用組成物をポリメチルメタクリレート・デラグラスA(超化成社製、商品名)の複の表面に及放法により要布したのち、80℃で120分間知然してこれを硬化させ、この硬化度模の物理をしらべたところ、用記表に示したとおりの需要がはられた。

が触23 部およびボリオキシエチレングリコール・クメナルシロキサン共電合体 RR-341(前出)0.08 部を添加してから、これを窮似下に7日間放置し熱成して被機組成物1~17を作り。さらに比較のために上紀においてエテルトリメトキレンランおよび/または有機けい衆化合物を添加しないで被機組成物18~26を作つた。(有機けい衆化合物)

| ∕ ₹ | _ | 1 | | | | | | 24 | | | 崖 | | ₹ | | | | | | | | | ₩ | | ≩< | E | | | |
|-------------------------|---|------|------|-----|-----|----------|-----|-----------|---------|----------------|-----------|---------|---------|-----|--------|--------|-----|-----|-------|-----|-----|--------------|------------|--------|----------------|---------|-------|---|
| 17 PK | 3.2 | 2 | - | 8 | m | - | 'n | 9 | ~ | æ | о | 10 | Ξ. | 12 | 13 | - | 2. | 16 | 1.7 | 8 | 6 7 | 2 0 | 2 1 | 2 2 | 23 | 54 | . 2 5 | • |
| 7 5 4 | * * * * * * * * * * * * * * * * * * * | | 2 | 3.1 | 63 | 7 | | 6 3 | - 21 | 2 1 | 2 1 | 2 1 | 2 1 | 2 1 | 2 1 | 2] | 2 1 | 2 1 | 2 1 | 1 | I | 0 [| . <u>.</u> | 2 1 | 2 1 | 2 1 | 5 7 | |
| + 5 | * * * 7 . 7 . 7 . 7 . 7 . 7 . 7 . 7 . 7 | į | 4 2 | 3.1 | 1 | 7 7 | - 6 | 1 | 4 51 | 4 54 | 7 | či ▼ | ¢1 ▼ | 23 | 4 2 | 2 7 | 7 7 | 61 | 4.2 | 9 | 6 3 | 20 | 63 | 2 | €1 * | €1 • | 7 7 | |
| 30 HF IV | - | < | | 1 | ı | _ | | _ | 7. | æ | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | - | - | 1 | . 02 | 1 | 1 | |
| 600 | | an ! | 1 | 1 | 1 | 1. | ı | <u></u> - | ı | 1 | - | 6. | æ – | 1 | 1 | 1 | 1 | l | ı | 1 | ı | 1 | t | 1 | 1 | . 02 | I | |
| 8位別用低点の高度主度分十.7 に対けにかけた | \$ <u>\$</u> | o | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | . <u></u> | 1 | 1 | - | о О | œ ~ | 1 | 1 | I | - | 1 | 1 | 1 | 1 | I | | . 0 2 | - |
| (i) | | ۵ | ı | ı | ı | 1 | ı | 1 | .1 | I | 1 | J | 1 | ,1 | I | I | | 6 | 8 | - | 1 | ı | I | I | 1 | ı | 1 | |
| | 70192 | | 001 | 001 | 100 | 001 | 001 | 100 | 001 | 100 | 001 | 001 | 001 | 100 | 300 | 100 | 100 | 001 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | - |
| | 5 | | 1 | 1 | ı | ı | ı | ı | ı | t | I | 1 | i | 1 | ı | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 10 | ı | ı | ı | ı | 1 | t | |

| 麩 | 2 | 表 |
|---|---|---|
| | | |

| . И Д В | 村 华 | 耗性 | 接着性 | 温水试模(| 85℃/3時間) | 為安定性 | 前ヒート | | |
|-------------------|----------------|---------------------------|----------------------------|-------|--------------------|---------------------|-------|------|------------|
| 112° | スチーュウール テスト | テーバ水托 テスト (へ1ズ (1%) | ゴバン目 (_{テスト}) | n es | 便 看 性 (ゴバンロテスト) | 80℃ (200時間) 彼 | レヨツク性 | 射鲸柱 | 畑 げ 加工性 |
| , 1 | a | 1.0 | 100/ 100 | 泉井 | 100/100 | 及盱 | 良好 | 1450 | э |
| . 2 | a | 1. 3 | * | • | - | - | • | 1500 | В |
| 3 | D | 3. 0 | • | • | - | - | | 1650 | В |
| 发 4 | 3 | 1.1 | . • | - | " | - | • | 1500 | В |
| . 5 | a | 1. 5 | • | ~ | - | - | • | 1350 | В |
| 6 | Ն | 3. 2 | . | ~ | - | - ! | • | 1600 | В |
| 7 | a | 1. 4 | · • | - | - | - | • | 1450 | A |
| 选 8 | Þ | 4.8 | | - | • | ~ | - | 1510 | A |
| . 9 | 3 | 1. 2 | | ~ | - | ~ | • | 1350 | В |
| 10 | a | 2.1 | . ~ | • | - 1 | - ! | • | 1410 | Α - |
| 11 | 3 | 3. 5 | • | ~ | - | - | | 1380 | A |
| ₅₄ 1.2 | 1 | 1. 1 | - ' | • | - | - | • | 1499 | В. |
| 13 | ۵ | 1. 6 | - : | • | - | - | * | 1500 | A |
| 14 | Þ | . 3.7 | - | . • | - | - | • | 1550 | A |
| 1.5 | ۵ | υ. 9 ' | • | . • | - ! | • | - ; | 1350 | В |
| ,16 | 8 | : 1.4 | - ' | - | - | • | • | 1400 | A |
| 17 | ъ | 3.8 | • : | • | | - | | 1550 | |

| | 18 | a | 1.2 Q.8 | | • | | クラック発生 | クラフク発生 | # 5 U | D |
|-----------|----|----------|------------|---|---|----------|-----------|----------------|--------------|----|
| | 20 | <u> </u> | 1.3 | | _ | • | やり発生 | クラフク 中 > 発生 | 900 | D |
| 比 | 21 | a | | | • | | 及 好 中> | • | 950 | ·D |
| 蚁 | | | 1.0 | | • | | クラフグで生 | クラック 発生 | 850 | C |
| | 23 | ā. | 1.2 | | • | | 连好 | やゝ発生 | 950 | C |
| 64 | 24 | c | 15.1 | | • | 40 / 100 | | 及好 | 750 | A |
| : | 25 | c | 11.7 | | • | 90 / 100 | | • | 700 | A |
| | 26 | С | 13.4 | : • • · · · · · · · · · · · · · · · · · | * | 90 / 100 | - | • | 800 | A |
| • | 26 | c | 1 3. 3 | 40/100 | • | 0/100 | . : | - | _ ; | A |

A…全く背部なし B…小さいブラックが3両以下と最後化 C… 小さいブラックが多数値生 D…大小のブラックが多数発生

This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning Operations and is not part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

| BLACK BORDERS | |
|--|-------------|
| ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES | |
| ☐ FADED TEXT OR DRAWING | |
| DELURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING | |
| ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES | |
| ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS | |
| ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS | |
| LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT | |
| ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE P | OOR QUALITY |
| □ OTHER: | |

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.